

# Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/JP05/001196

International filing date: 28 January 2005 (28.01.2005)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: JP  
Number: 2004-023958  
Filing date: 30 January 2004 (30.01.2004)

Date of receipt at the International Bureau: 03 March 2005 (03.03.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b)



World Intellectual Property Organization (WIPO) - Geneva, Switzerland  
Organisation Mondiale de la Propriété Intellectuelle (OMPI) - Genève, Suisse

07.02.2005

日本国特許庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日 2004年 1月30日  
Date of Application:

出願番号 特願2004-023958  
Application Number:

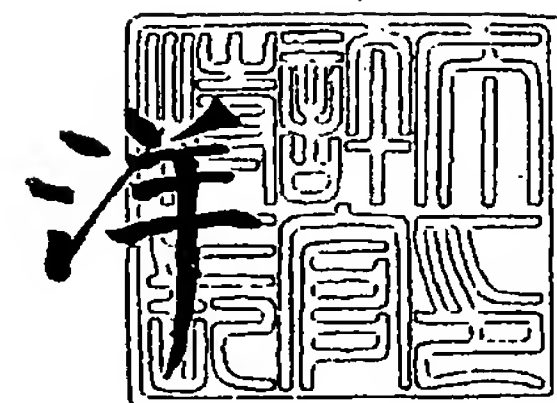
[ST. 10/C]: [JP2004-023958]

出願人 住友電気工業株式会社  
Applicant(s):

2005年 1月12日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

小川



【書類名】 特許願  
【整理番号】 1040113  
【提出日】 平成16年 1月30日  
【あて先】 特許庁長官殿  
【国際特許分類】 H01F 1/33  
H01F 1/22

【発明者】  
【住所又は居所】 兵庫県伊丹市昆陽北一丁目1番1号 住友電気工業株式会社 伊丹製作所内  
【氏名】 久貝 裕一

【発明者】  
【住所又は居所】 兵庫県伊丹市昆陽北一丁目1番1号 住友電気工業株式会社 伊丹製作所内  
【氏名】 前田 徹

【発明者】  
【住所又は居所】 兵庫県伊丹市昆陽北一丁目1番1号 住友電気工業株式会社 伊丹製作所内  
【氏名】 五十嵐 直人

【発明者】  
【住所又は居所】 兵庫県伊丹市昆陽北一丁目1番1号 住友電気工業株式会社 伊丹製作所内  
【氏名】 豊田 晴久

【発明者】  
【住所又は居所】 兵庫県伊丹市昆陽北一丁目1番1号 住友電気工業株式会社 伊丹製作所内  
【氏名】 廣瀬 和弘

【発明者】  
【住所又は居所】 兵庫県伊丹市昆陽北一丁目1番1号 住友電気工業株式会社 伊丹製作所内  
【氏名】 三村 浩二

【発明者】  
【住所又は居所】 兵庫県伊丹市昆陽北一丁目1番1号 住友電気工業株式会社 伊丹製作所内  
【氏名】 西岡 隆夫

【特許出願人】  
【識別番号】 000002130  
【住所又は居所】 大阪府大阪市中央区北浜四丁目5番33号  
【氏名又は名称】 住友電気工業株式会社

【代理人】  
【識別番号】 100064746  
【弁理士】  
【氏名又は名称】 深見 久郎

【選任した代理人】  
【識別番号】 100085132  
【弁理士】  
【氏名又は名称】 森田 俊雄

【選任した代理人】  
【識別番号】 100083703  
【弁理士】  
【氏名又は名称】 仲村 義平

【選任した代理人】  
【識別番号】 100096781  
【弁理士】  
【氏名又は名称】 堀井 豊  
【選任した代理人】  
【識別番号】 100098316  
【弁理士】  
【氏名又は名称】 野田 久登  
【選任した代理人】  
【識別番号】 100109162  
【弁理士】  
【氏名又は名称】 酒井 將行  
【手数料の表示】  
【予納台帳番号】 008693  
【納付金額】 21,000円  
【提出物件の目録】  
【物件名】 特許請求の範囲 1  
【物件名】 明細書 1  
【物件名】 図面 1  
【物件名】 要約書 1  
【包括委任状番号】 9908053

## 【書類名】 特許請求の範囲

## 【請求項 1】

互いに接合された複数の複合磁性粒子を備え、

前記複数の複合磁性粒子の各々は、金属磁性粒子と、前記金属磁性粒子の表面を取り囲む絶縁性の下層被膜と、前記下層被膜の表面を取り囲み、ケイ素を含む上層被膜と、前記下層被膜および前記上層被膜の少なくともいずれか一方に設けられた金属酸化物を含む分散粒子とを有し、

前記下層被膜と前記上層被膜とを合わせた被膜の平均厚みが  $T$  である場合、前記分散粒子の平均粒径  $R$  は、 $10\text{ nm} < R \leq 2T$  の関係を満たす、圧粉磁心。

## 【請求項 2】

前記下層被膜は、リン化合物、ケイ素化合物、ジルコニウム化合物およびアルミニウム化合物からなる群より選ばれた少なくとも一種を含む、請求項 1 に記載の圧粉磁心。

## 【請求項 3】

前記分散粒子は、ケイ素酸化物、アルミニウム酸化物、ジルコニウム酸化物およびチタン酸化物からなる群より選ばれた少なくとも一種を含む、請求項 1 または 2 に記載の圧粉磁心。

## 【請求項 4】

前記下層被膜の平均厚みは、 $10\text{ nm}$  以上  $1\text{ }\mu\text{ m}$  以下である、請求項 1 から 3 のいずれか 1 項に記載の圧粉磁心。

## 【請求項 5】

前記上層被膜の平均厚みは、 $10\text{ nm}$  以上  $1\text{ }\mu\text{ m}$  以下である、請求項 1 から 4 のいずれか 1 項に記載の圧粉磁心。

## 【請求項 6】

請求項 1 から 5 のいずれか 1 項に記載の圧粉磁心の製造方法であって、

前記複数の金属磁性粒子を成形することによって成形体を形成する工程と、

前記成形体を  $500\text{ }^{\circ}\text{C}$  以上  $800\text{ }^{\circ}\text{C}$  未満の温度で熱処理する工程とを備える、圧粉磁心の製造方法。

【書類名】 明細書

【発明の名称】 圧粉磁心およびその製造方法

【技術分野】

【0001】

この発明は、一般的には、圧粉磁心およびその製造方法に関し、より特定的には、電磁弁、モーターのコアおよび電源回路用のリアクトルなどとして用いられる圧粉磁心およびその製造方法に関する。

【背景技術】

【0002】

近年、電磁弁、モーターまたは電源回路などを備える電気機器には、小型化、高効率化および高出力化が強く求められている。このような要求に応える手段として、これら電気機器の作動周波数の高周波化が有効であり、電磁弁やモーターなどでは数百Hzから数kHz、電源回路では数十kHzから数百kHzという水準で高周波化が進んでいる。

【0003】

電磁弁やモーターなどの電気機器では、これまで数百Hz以下の周波数で作動させる場合が主であり、その鉄心材料としては、低鉄損であることを利点とするいわゆる電磁鋼板材が用いられてきた。磁心材料の鉄損は、ヒステリシス損と渦電流損とに大別される。上述の電磁鋼板材は、比較的保磁力が小さい鉄-ケイ素合金を薄板化し、その表面に絶縁処理を施したものを積層することによって作製され、特にヒステリシス損が小さいことで知られている。渦電流損が作動周波数の2乗に比例するのに対して、ヒステリシス損は作動周波数の1乗に比例する。このため、作動周波数が数百Hz以下の帯域ではヒステリシス損が支配的であり、この周波数帯域においては、特にヒステリシス損が小さい電磁鋼板材の利用が有効であると言える。

【0004】

しかし、作動周波数が数kHzの帯域では渦電流損が支配的になることから、電磁鋼板材に変わる鉄心用材料が必要になる。この場合に有効に利用されるのが、比較的良好的な低渦電流損特性を示す圧粉磁心やソフトフェライト磁心である。圧粉磁心は、鉄、鉄-ケイ素合金、センダスト合金、パーマロイ合金および鉄系非晶質合金に代表される粉末状の軟磁性材料を用いて作製される。より具体的には、この軟磁性材料に絶縁性に優れるバインダー部材を混合したもの、または粉末の表面に絶縁処理を施したものを加圧成形することによって作製される。

【0005】

一方、ソフトフェライト磁心は、材料自体が高い電気抵抗を有するため、特に優れた低渦電流損材料として知られている。しかし、ソフトフェライトを用いた場合、飽和磁束密度が低いため、高出力化が困難という問題が発生する。この点に関しては、圧粉磁心の場合、飽和磁束密度が高い軟磁性材料が主成分として用いられているため、有利である。

【0006】

また、圧粉磁心の場合、その製造工程において加圧成形が実施されるが、その際の変形によって粉末に歪みが導入される。このため、保磁力が増大し、結果として圧粉磁心のヒステリシス損が大きくなるという問題が発生する。したがって、圧粉磁心を鉄心材料として利用する場合には、加圧成形により成形体を作製した後、歪み取りの処理を行なうことが必要となる。

【0007】

この歪み取りの処理として有効であるのが、成形体に対して行なう熱焼鈍処理である。この熱処理時の温度を高く設定すれば、歪み取りの効果は大きくなり、ヒステリシス損を低減させることができる。しかし、熱処理時の温度をあまりに高く設定しすぎると、軟磁性材料を構成する絶縁性のバインダー部材や絶縁被膜が、分解したり劣化したりし、渦電流損が増大する原因となる。したがって、このような問題が生じることのない温度範囲でしか熱処理を行なうことができず、軟磁性材料を構成する絶縁性のバインダー部材や絶縁被膜の耐熱性を向上させることが、圧粉磁心の鉄損を低減させるにおいて重要な課題とな



っている。

#### 【0008】

従来の圧粉磁心の代表例として、絶縁被膜としてリン酸塩被膜を設けた純鉄粉に、0.05質量%から0.5質量%ほどの樹脂部材を添加し、これを加熱成形した後、歪み取りのための熱焼鈍を実施して作製されたものがある。この場合、熱処理時の温度は、絶縁被膜の熱分解温度である200℃から500℃ほどである。しかしこの場合、熱処理時の温度が低く、歪み取りの十分な効果を得ることができない。

#### 【0009】

また別に、特開2003-303711号公報には、ヒステリシス損を低減させるための焼鈍に際し、絶縁が破壊されない耐熱性絶縁被膜を有する鉄基粉末およびこれを用いた圧粉磁心が開示されている（特許文献1）。特許文献1に開示された鉄基粉末によれば、鉄を主成分とする粉末の表面が、シリコン樹脂および顔料を含有する被膜で覆われている。さらに好ましくは、シリコン樹脂および顔料を含有する被膜の下層として、シリコン化合物などの物質を含む被膜が設けられている。顔料は、D50として規定される平均粒径が40μm以下の粉末とすることが好ましい。

【特許文献1】特開2003-303711号公報

#### 【発明の開示】

#### 【発明が解決しようとする課題】

#### 【0010】

上述のとおり、圧粉磁心は、粉末状の軟磁性材料を加圧成形することによって作製される。しかし、特許文献1に開示された鉄基粉末を加圧成形すると、粉末の表面に設けられた被膜同士が強く擦れ合うため、被膜が破壊された状態で圧粉磁心が形成される。この場合、鉄基粉末間において渦電流が流れ、渦電流損に起因する圧粉磁心の鉄損が増大するという問題が生じる。また、鉄基粉末を加圧成形すると、粉末の表面に設けられた被膜を圧縮する力が生じ、被膜が部分的に薄くなった状態で圧粉磁心が形成される。この場合にも、薄くなった部分において被膜が絶縁被膜として十分に機能せず、同様に渦電流損に起因する圧粉磁心の鉄損が増大するという問題が生じる。

#### 【0011】

そこでこの発明の目的は、上記の課題を解決することであり、耐熱性に優れた絶縁性の被膜を備えるとともに、その被膜を良好に機能させて粒子間を流れる渦電流を十分に抑制できる圧粉磁心およびその製造方法を提供することである。

#### 【課題を解決するための手段】

#### 【0012】

この発明に従った圧粉磁心は、互いに接合された複数の複合磁性粒子を備える。複数の複合磁性粒子の各々は、金属磁性粒子と、金属磁性粒子の表面を取り囲む絶縁性の下層被膜と、下層被膜の表面を取り囲み、ケイ素を含む上層被膜と、下層被膜および上層被膜の少なくともいずれか一方に設けられた金属酸化物を含む分散粒子とを有する。下層被膜と上層被膜とを合わせた被膜の平均厚みがTである場合、分散粒子の平均粒径Rは、 $10\text{ nm} < R \leq 2T$ の関係を満たす。

#### 【0013】

このように構成された圧粉磁心によれば、絶縁性を有する下層被膜の表面を覆うようにケイ素(Si)を含む上層被膜が設けられている。ケイ素を含む上層被膜は、200℃から300℃ほどの温度で熱分解するが、その熱分解によって、通常600℃程度までの耐熱性を有するSi-O系化合物に変化する。また、金属酸化物を含む分散粒子は、1000℃以上の高温に対しても耐熱性を備える。このため、上層被膜中に金属酸化物を含む分散粒子が存在する場合、熱分解により変化したSi-O系化合物の耐熱性をさらに向上させることができる。したがって、圧粉磁心の歪み取りを行なうために高温で熱処理した場合に、上層被膜が劣化することを抑制できる。また、上層被膜の劣化を抑制することにより、その下層に設けられた下層被膜を保護することができる。これにより、高温の熱処理によってヒステリシス損が低減され、かつ、上層被膜および下層被膜によって渦電流損が

低減された圧粉磁心を実現することができる。

【0014】

また、下層被膜および上層被膜の少なくともいずれか一方に設けられた分散粒子は、圧粉磁心を作製する際の加圧成形時において、隣り合う金属磁性粒子間を隔てるスペーサとしての機能を発揮する。このとき、分散粒子の平均粒径 $R$ は $10\text{ nm}$ を超えるため、分散粒子が小さすぎるといことがない。このため、絶縁性粒子を金属磁性粒子間のスペーサとして十分に機能させることができ、圧粉磁心の渦電流損をより確実に低減することができる。

【0015】

また、分散粒子の平均粒径 $R$ は、被膜の厚み $T$ の2倍以下である。このため、分散粒子の平均粒径が被膜の厚みに対して大きすぎるといことがなく、分散粒子を安定して被膜に担持することができる。これにより、分散粒子が被膜から脱落することを抑止し、上述の分散粒子による効果を確実に得ることができる。また、圧粉磁心を作製する際の加圧成形時に、分散粒子が金属磁性粒子の塑性変形の妨げとならず、加圧成形後に得られる成形体の密度を向上させることができる。さらに、加圧成形時に、分散粒子によって上層被膜および下層被膜が破壊されたり、隣り合う金属磁性粒子間に空隙が生じたりすることを抑止できる。これにより、金属磁性粒子間の絶縁性を保持し、その間に反磁界が生じることを抑制できる。さらに、加圧成形時に被膜の2層構造を有することによって、上層被膜と下層被膜との間がすべりによりずれることが可能となる。これにより、金属磁性粒子の変形時に上層被膜が破れることを防止する効果があり、保護性を備える上層被膜が均一となる。

【0016】

また好ましくは、下層被膜は、リン化合物、ケイ素化合物、ジルコニウム化合物およびアルミニウム化合物からなる群より選ばれた少なくとも一種を含む。このように構成された圧粉磁心によれば、これらの材料は絶縁性に優れているため、金属磁性粒子間に流れる渦電流をより効果的に抑制することができる。

【0017】

また好ましくは、分散粒子は、ケイ素酸化物、アルミニウム酸化物、ジルコニウム酸化物およびチタン酸化物からなる群より選ばれた少なくとも一種を含む。このように構成された圧粉磁心によれば、これらの材料は、十分に高い耐熱性を備えている。このため、上層被膜中に分散粒子が存在する場合に、上層被膜の耐熱性をより効果的に向上させることができる。

【0018】

また好ましくは、下層被膜の平均厚みは、 $10\text{ nm}$ 以上 $1\text{ }\mu\text{ m}$ 以下である。このように構成された圧粉磁心によれば、下層被膜の平均厚みが $10\text{ nm}$ 以上であるため、被膜中を流れるトンネル電流を抑制し、このトンネル電流に起因する渦電流損の増大を抑えることができる。また、下層被膜の平均厚みが $1\text{ }\mu\text{ m}$ 以下であるため、金属磁性粒子間の距離が大きくなりすぎて反磁界が発生する（金属磁性粒子に磁極が生じてエネルギーの損失が発生する）ことを防止できる。これにより、反磁界の発生に起因したヒステリシス損の増大を抑制できる。また、圧粉磁心に占める下層被膜の体積比率が小さくなりすぎて、圧粉磁心の飽和磁束密度が低下することを防止できる。

【0019】

また好ましくは、上層被膜の平均厚みは、 $10\text{ nm}$ 以上 $1\text{ }\mu\text{ m}$ 以下である。このように構成された圧粉磁心によれば、上層被膜の平均厚みが $10\text{ nm}$ 以上であるため、上層被膜がある程度の厚みをもって形成されている。このため、圧粉磁心の熱処理時の保護膜として上層被膜を良好に機能させることができる。また、上層被膜の平均厚みが $1\text{ }\mu\text{ m}$ 以下であるため、金属磁性粒子間の距離が大きくなりすぎて反磁界が発生することを防止できる。これにより、反磁界の発生に起因したヒステリシス損の増大を抑制できる。

【0020】

この発明に従った圧粉磁心に製造方法は、上述のいずれかに記載の圧粉磁心を製造する



方法である。圧粉磁心の製造方法は、複数の金属磁性粒子を成形することによって成形体を形成する工程と、成形体を500℃以上800℃未満の温度で熱処理する工程とを備える。このように構成された圧粉磁心の製造方法によれば、500℃以上の高温で成形体を熱処理することによって、成形体の内部に存在する歪みを十分に低減させることができる。これにより、ヒステリシス損の小さい圧粉磁心を得ることができる。また、熱処理の温度が800℃未満であるため、温度が高すぎて上層被膜および下層被膜が劣化するという事態を回避することができる。

【発明の効果】

【0021】

以上説明したように、この発明に従えば、耐熱性に優れた絶縁性の被膜を備えるとともに、その被膜を良好に機能させて粒子間を流れる渦電流を十分に抑制できる圧粉磁心およびその製造方法を提供することができる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0022】

この発明の実施の形態について、図面を参照して説明する。

【0023】

図1は、この発明の実施の形態における圧粉磁心の表面を示した模式図である。図2は、図1中の2点鎖線I-Iで囲んだ範囲を拡大して示した模式図である。

【0024】

図1および図2を参照して、圧粉磁心は、金属磁性粒子10と、金属磁性粒子10の表面10aを取り囲む下層被膜20と、下層被膜20の表面20aを取り囲み、ケイ素(Si)を含む上層被膜30とからなる複数の複合磁性粒子40を備える。複数の複合磁性粒子40の各々は、複合磁性粒子40が有する凹凸の噛み合わせによって互いに接合されている。

【0025】

圧粉磁心は、さらに、上層被膜30の内部に埋設された複数の分散粒子50を備える。分散粒子50は、金属酸化物を含む。複数の分散粒子50は、上層被膜30の内部においてほぼ均一に分散して配置されている。下層被膜20および上層被膜30から構成される金属磁性粒子10の被膜25は、平均厚みTを有する。分散粒子50は、平均粒径Rを有する。このとき、分散粒子50の平均粒径Rは、 $10\text{ nm} < R \leq 2T$ の関係を満たす。

【0026】

なお、ここで言う平均厚みTとは、組成分析(TEM-EDX: transmission electron microscope energy dispersive X-ray spectroscopy)によって得られる膜組成と、誘導結合プラズマ質量分析(ICP-MS: inductively coupled plasma-mass spectrometry)によって得られる元素量とを鑑みて相当厚さを導出し、さらに、TEM写真により直接、被膜を観察し、先に導出された相当厚さのオーダーを確認することで決定されるものを言う。また、ここで言う平均粒径とは、レーザー散乱回折法によって測定した粒径のヒストグラム中、粒径の小さいほうからの質量の和が総質量の50%に達する粒子の粒径、つまり50%粒径Dをいう。

【0027】

金属磁性粒子10には、磁気的特性として、高い飽和磁束密度と低い保磁力とを示す材料が用いられ、たとえば、鉄(Fe)、鉄(Fe)-シリコン(Si)系合金、鉄(Fe)-窒素(N)系合金、鉄(Fe)-ニッケル(Ni)系合金、鉄(Fe)-炭素(C)系合金、鉄(Fe)-ホウ素(B)系合金、鉄(Fe)-コバルト(Co)系合金、鉄(Fe)-リン(P)系合金、鉄(Fe)-ニッケル(Ni)-コバルト(Co)系合金および鉄(Fe)-アルミニウム(Al)-シリコン(Si)系合金などを用いることができる。その中でも特に、純鉄粒子、鉄-ケイ素(0を超え6.5質量%以下)合金粒子、鉄-アルミニウム(0を超え5質量%以下)合金粒子、パーマロイ合金粒子、電磁ステンレス合金粒子、センダスト合金粒子および鉄系アモルファス合金粒子などを金属磁性粒子10として用いることが好ましい。

## 【0028】

金属磁性粒子10の平均粒径は、 $5\mu\text{m}$ 以上 $300\mu\text{m}$ 以下であることが好ましい。金属磁性粒子10の平均粒径を $5\mu\text{m}$ 以上にした場合、金属磁性粒子10が酸化されにくい。ため、圧粉磁心の磁気的特性を向上させることができる。また、金属磁性粒子10の平均粒径を $300\mu\text{m}$ 以下にした場合、加圧成形時において粉末の圧縮性が低下することがない。これにより、加圧成形によって得られる成形体の密度を大きくすることができる。

## 【0029】

下層被膜20は、少なくとも電気的絶縁性を有する材料から形成されており、たとえば、リン化合物、ケイ素化合物、ジルコニウム化合物またはアルミニウム化合物などから形成されている。このような材料としては、リンと鉄とを含むリン酸鉄の他、リン酸マンガ、リン酸亜鉛、リン酸カルシウム、酸化シリコン、酸化チタン、酸化アルミニウムまたは酸化ジルコニウムなどを挙げることができる。

## 【0030】

下層被膜20は、金属磁性粒子10間の絶縁層として機能する。金属磁性粒子10を下層被膜20で覆うことによって、圧粉磁心の電気抵抗率 $\rho$ を大きくすることができる。これにより、金属磁性粒子10間に渦電流が流れるのを抑制して、渦電流損に起因する圧粉磁心の鉄損を低減させることができる。

## 【0031】

金属磁性粒子10にリン化合物からなる下層被膜20を形成する方法としては、リン酸金属塩およびリン酸エステルを水または有機溶媒に溶かした溶液を用いて、湿式被膜処理を実施する方法が挙げられる。金属磁性粒子10にケイ素化合物からなる下層被膜20を形成する方法としては、シランカップリング剤、シリコーン樹脂およびシラザンなどのケイ素化合物を湿式被膜処理する方法や、ゾルゲル法によりケイ酸ガラスおよび酸化ケイ素を被膜処理する方法が挙げられる。

## 【0032】

金属磁性粒子10にジルコニウム化合物からなる下層被膜20を形成する方法としては、ジルコニウムカップリング剤を湿式被膜処理する方法や、ゾルゲル法により酸化ジルコニウムを被膜する方法が挙げられる。金属磁性粒子10にアルミニウム化合物からなる下層被膜20を形成する方法としては、ゾルゲル法により酸化アルミニウムを被膜する方法が挙げられる。なお、下層被膜20を形成する方法は、以上に説明した方法に限定されるものではなく、形成する下層被膜20に適した各種の方法を採用することができる。

## 【0033】

下層被膜20の平均厚みは、 $10\text{nm}$ 以上 $1\mu\text{m}$ 以下であることが好ましい。この場合、トンネル電流に起因して渦電流損が増大することを防止するとともに、金属磁性粒子10間に発生する反磁界に起因してヒステリシス損が増大することを防止できる。下層被膜20の平均厚みは、 $500\text{nm}$ 以下であることがさらに好ましく、 $200\text{nm}$ 以下であることがまたさらに好ましい。

## 【0034】

上層被膜30は、ケイ素を含むケイ素化合物から形成されている。このようなケイ素化合物としては、特に限定されるものではないが、たとえば、酸化ケイ素、ケイ酸ガラスおよびシリコーン樹脂などを挙げることができる。

## 【0035】

上層被膜30を形成する方法としては、下層被膜20が形成された金属磁性粒子10に対して、ゾルゲル法、湿式被膜処理法および気相析出法などを実施し、上層被膜30を形成する方法や、下層被膜20が形成された金属磁性粒子10の圧粉成形体を、ケイ素を含むガス中に配置し、熱処理を実施することによって、上層被膜30を形成する方法などを挙げることができる。なお、上層被膜30を形成する方法は、以上に説明した方法に限定されるものではなく、形成する上層被膜30に適した各種の方法を採用することができる。

## 【0036】

図3および図4は、図2中に示す分散粒子の配置位置の変形例を示す模式図である。図

3を参照して、分散粒子50は、下層被膜20の内部に埋設されていても良い。図4を参照して、分散粒子50は、下層被膜20および上層被膜30の両方の内部に埋設されていても良い。分散粒子50は、下層被膜20および上層被膜30の少なくともいずれか一方の内部、つまり、被膜25のいずれかの位置に埋設されている。

#### 【0037】

図2から図4を参照して、分散粒子50は、ケイ素酸化物、アルミニウム酸化物、ジルコニウム酸化物およびチタン酸化物などの金属酸化物から形成されている。分散粒子50を被膜25中に分散させる方法としては、下層被膜20または上層被膜30を形成する工程時に、粉末状の状態の分散粒子50をこれらの被膜に混合して設ける方法や、被膜に分散粒子50を析出させる方法などが挙げられるが、これらの方法に限定されるものでない。

#### 【0038】

この発明の実施の形態における圧粉磁心は、互いに接合された複数の複合磁性粒子40を備える。複数の複合磁性粒子40の各々は、金属磁性粒子10と、金属磁性粒子10の表面10aを取り囲む絶縁性の下層被膜20と、下層被膜20の表面20aを取り囲み、ケイ素を含む上層被膜30と、下層被膜20および上層被膜30の少なくともいずれか一方に設けられた金属酸化物を含む分散粒子50とを有する。下層被膜20と上層被膜30とを合わせた被膜25の平均厚みがTである場合、分散粒子50の平均粒径Rは、 $10\text{ nm} < R \leq 2T$ の関係を満たす。

#### 【0039】

続いて、図1中に示す圧粉磁心を製造する方法について説明を行なう。まず、既に説明した所定の方法に従って、金属磁性粒子10の表面10aに下層被膜20を形成し、さらに下層被膜20の表面20aに上層被膜30を形成する。また、これらの被膜を形成する工程と同時に、被膜25のいずれかの位置に分散粒子50を設ける工程を実施する。この際、分散粒子50の平均粒径Rは、被膜25の平均厚みTの2倍以下であるため、被膜25中に確実に保持された状態で分散粒子50を設けることができる。以上の工程により、複合磁性粒子40を得る。

#### 【0040】

次に、複合磁性粒子40を金型に入れ、たとえば、 $700\text{ MPa}$ から $1500\text{ MPa}$ までの圧力で加圧成形する。これにより、複合磁性粒子40が圧縮されて成形体を得られる。加圧成形する雰囲気は、大気中でも良いが、不活性ガス雰囲気または減圧雰囲気とすることが好ましい。この場合、大気中の酸素によって複合磁性粒子40が酸化されるのを抑制できる。

#### 【0041】

この加圧成形時、隣り合う金属磁性粒子10の間には、被膜25に埋設された分散粒子50が存在する。分散粒子50は、金属磁性粒子10同士の物理的な接触を抑制するスペーサとしての機能を果たし、隣り合う金属磁性粒子10が互いに接触した状態で成形体が形成されることを防止する。この際、分散粒子50の平均粒径Rは、 $10\text{ nm}$ を超えるため、小さすぎるために分散粒子50のスペーサとしての機能が損なわれるということがない。したがって、隣り合う金属磁性粒子10の間に厚みが $10\text{ nm}$ を超える被膜25を確実に介在させることができ、この間の絶縁性を保持することができる。

#### 【0042】

また、分散粒子50の平均粒径Rは、被膜25の平均厚みTの2倍以下であるため、分散粒子50が加圧成形を行なう際の物理的な障害になるということがない。このため、加圧成形時に流動する分散粒子50によって被膜25が破壊されたり、分散粒子50によって金属磁性粒子10の変形が妨げられたりする事態を回避することができる。

#### 【0043】

次に、加圧成形によって得られた成形体に、 $500^{\circ}\text{C}$ 以上 $800^{\circ}\text{C}$ 未満の温度で熱処理を行なう。これにより、成形体の内部に存在する歪みや転位を取り除くことができる。この際、シリコン樹脂などから形成され、耐熱性を有する上層被膜30は、下層被膜20



を熱から保護する保護膜として機能する。このため、500℃以上の高温で熱処理しているにもかかわらず、下層被膜20が劣化することはない。なお、熱処理する雰囲気は、大気中でも良いが、不活性ガス雰囲気または減圧雰囲気とすることが好ましい。この場合、大気中の酸素によって複合磁性粒子40が酸化されるのを抑制できる。

#### 【0044】

上層被膜30の平均厚みは、10nm以上1μm以下であることが好ましい。この場合、上述の熱処理の工程時に下層被膜20が劣化することを効果的に抑制するとともに、金属磁性粒子10間に発生する反磁界に起因してヒステリシス損が増大することを防止できる。上層被膜30の平均厚みは、500nm以下であることがさらに好ましく、200nm以下であることがまたさらに好ましい。

#### 【0045】

熱処理後、成形体に押出し加工や切削加工など適当な加工を施すことによって、図1中に示す圧粉磁心が完成する。

#### 【0046】

このように構成された圧粉磁心およびその製造方法によれば、成形体に対して500℃以上の高温で熱処理することができるため、圧粉磁心のヒステリシス損を十分に低減させることができる。一方、この熱処理にもかかわらず下層被膜20および上層被膜30が劣化しないため、これらの被膜によって圧粉磁心の渦電流損を低減させることができる。これにより、鉄損が十分に低減された圧粉磁心を得ることができる。

#### 【実施例】

#### 【0047】

以下に説明する実施例によって、本発明における圧粉磁心の評価を行なった。

#### 【0048】

まず、市販されているヘガネス社製のアトマイズ純鉄粉（商品名「ABC100.30」）を金属磁性粒子10として準備した。このアトマイズ純鉄粉をリン酸鉄水溶液中に浸し、攪拌処理することによって、下層被膜20としてのリン酸鉄化合物被膜をアトマイズ純鉄粉の表面に形成した。リン酸化合物被膜の平均厚みは、50nmおよび100nmの2種類とした。

#### 【0049】

次に、東芝GEシリコン社製のシリコン樹脂（商品名「XC96-BO446」）および二酸化ケイ素粉末をエチルアルコールに溶解および分散し、この溶液に上述の被膜されたアトマイズ純鉄粉を投入した。この際、シリコン樹脂は、アトマイズ純鉄粉に対して0.25質量%の割合となるように溶解し、二酸化ケイ素粉末は、アトマイズ純鉄粉に対して0.02質量%の割合となるように溶解した。また、二酸化ケイ素粉末の平均粒径は、10nm、30nmおよび50nmの3種類とした。その後、攪拌処理および乾燥処理を経ることによって、上層被膜30として平均厚み100nmを有するシリコン樹脂が形成され、そのシリコン樹脂中に分散粒子50としての二酸化ケイ素粉末が設けられた複合磁性粒子40としての粉末を得た。

#### 【0050】

次に、この粉末を、面圧1275MPa（ $=13\text{ ton/cm}^2$ ）の圧力で加圧成形し、リング状（外径35mm、内径20mm、厚み5mm）の成形体を形成した。その後、窒素雰囲気中において、成形体を400℃から1000℃までの範囲の異なる温度条件下で熱処理した。以上の工程により、下層被膜の厚みや分散粒子の粒径、熱処理時の温度条件が異なる、複数の圧粉磁心材料を作製した。

#### 【0051】

また比較例として、上述と同様の方法により、リン酸鉄化合物被膜のみを設けたアトマイズ純鉄粉（バインダー用としてアトマイズ純鉄粉に対して0.05質量%の割合で樹脂を添加）と、二酸化ケイ素粉末を設けず、リン酸鉄化合物被膜およびシリコン樹脂被膜のみを設けたアトマイズ鉄粉とを用いて、圧粉磁心材料を作製した。

#### 【0052】

次に、作製した圧粉磁心材料の周囲にコイル（1次巻き数が300回、2次巻き数が20回）を均等に巻き、圧粉磁心材料の鉄損特性の評価を行なった。評価には、理研電子製のBHトレーサ（ACBH-100K型）を用い、励起磁束密度を1（T：テスラ）とし、測定周波数を1000Hzとした。測定により得られた各圧粉磁心材料の鉄損値を表1に示す。

【0053】

【表1】

リン酸鉄化合物 被膜の平均 厚み (nm)	シリコン樹脂 被膜の平均 厚み (nm)	熱処理 温度 (°C)	二酸化ケイ素粉末の平均粒径 (nm)			鉄損値 (W/kg)	リン酸鉄化合物被膜 およびシリコン樹脂被膜 のみを設けた比較例	リン酸鉄化合物被膜 のみを設けた 比較例
			10	30	50			
50	100	400	234	231	236	226		219
		500	245	177	182	319		936
		600	560	132	129	773		3275
		700	2540	105	109	2923		測定不能
		800	測定不能	245	423	測定不能		測定不能
		900	測定不能	980	1203	測定不能		測定不能
		1000	測定不能	2988	3874	測定不能		測定不能
		400	244	250	239	243		236
100	100	500	268	165	180	276		785
		600	489	119	121	420		2363
		700	2108	98	101	1825		4833
		800	4892	188	278	4902		測定不能
		900	測定不能	678	990	測定不能		測定不能
		1000	測定不能	2540	3666	測定不能		測定不能

【0054】

表1を参照して、リン酸鉄化合物被膜のみを設けた比較例およびリン酸鉄化合物被膜お



よびシリコン樹脂被膜のみを設けた比較例では、熱処理温度が400℃の場合に鉄損値が最小となり、熱処理温度が上昇するに従ってその値が増加した。このことから、比較例では、下層被膜20として設けたリン酸鉄化合物被膜が熱処理によって良好に機能していないことが分かった。

#### 【0055】

これに対して、二酸化ケイ素粉末の平均粒径を30nmおよび50nmとした圧粉磁心材料では、700℃までの範囲においては、熱処理温度が上昇するに従って鉄損が小さくなっていき、熱処理温度が800℃で鉄損が大きくなるという結果になった。このことから、少なくとも熱処理温度が700℃までの範囲においては、下層被膜20が劣化せず、アトマイズ純鉄粉間に生じる渦電流を効果的に抑制していたことを確認できた。一方で、二酸化ケイ素粉末の平均粒径を10nmとした圧粉磁心材料では、このような結果を得ることができなかった。

#### 【0056】

図5は、この実施例において、各圧粉磁心材料で得られる最小の鉄損値を比較するグラフである。図5を参照して、二酸化ケイ素粉末の平均粒径を30nmおよび50nmとした圧粉磁心材料では、約100W/kgの鉄損値が得られており、各比較例や二酸化ケイ素粉末の平均粒径を10nmとした圧粉磁心材料で得られた鉄損値、約220W/kgと比較して、鉄損値が半分以下になることが分かった。以上の結果から、本発明に従って作製された圧粉磁心材料が、優れた低鉄損材料であることを確認できた。

#### 【0057】

今回開示された実施の形態および実施例はすべての点で例示であって制限的なものではないと考えられるべきである。本発明の範囲は上記した説明ではなくて特許請求の範囲によって示され、特許請求の範囲と均等の意味および範囲内でのすべての変更が含まれることが意図される。

#### 【図面の簡単な説明】

#### 【0058】

【図1】 この発明の実施の形態における圧粉磁心の表面を示した模式図である。

【図2】 図1中の2点鎖線I Iで囲んだ範囲を拡大して示した模式図である。

【図3】 図2中に示す分散粒子の配置位置の変形例を示す模式図である。

【図4】 図2中に示す分散粒子の配置位置の別の変形例を示す模式図である。

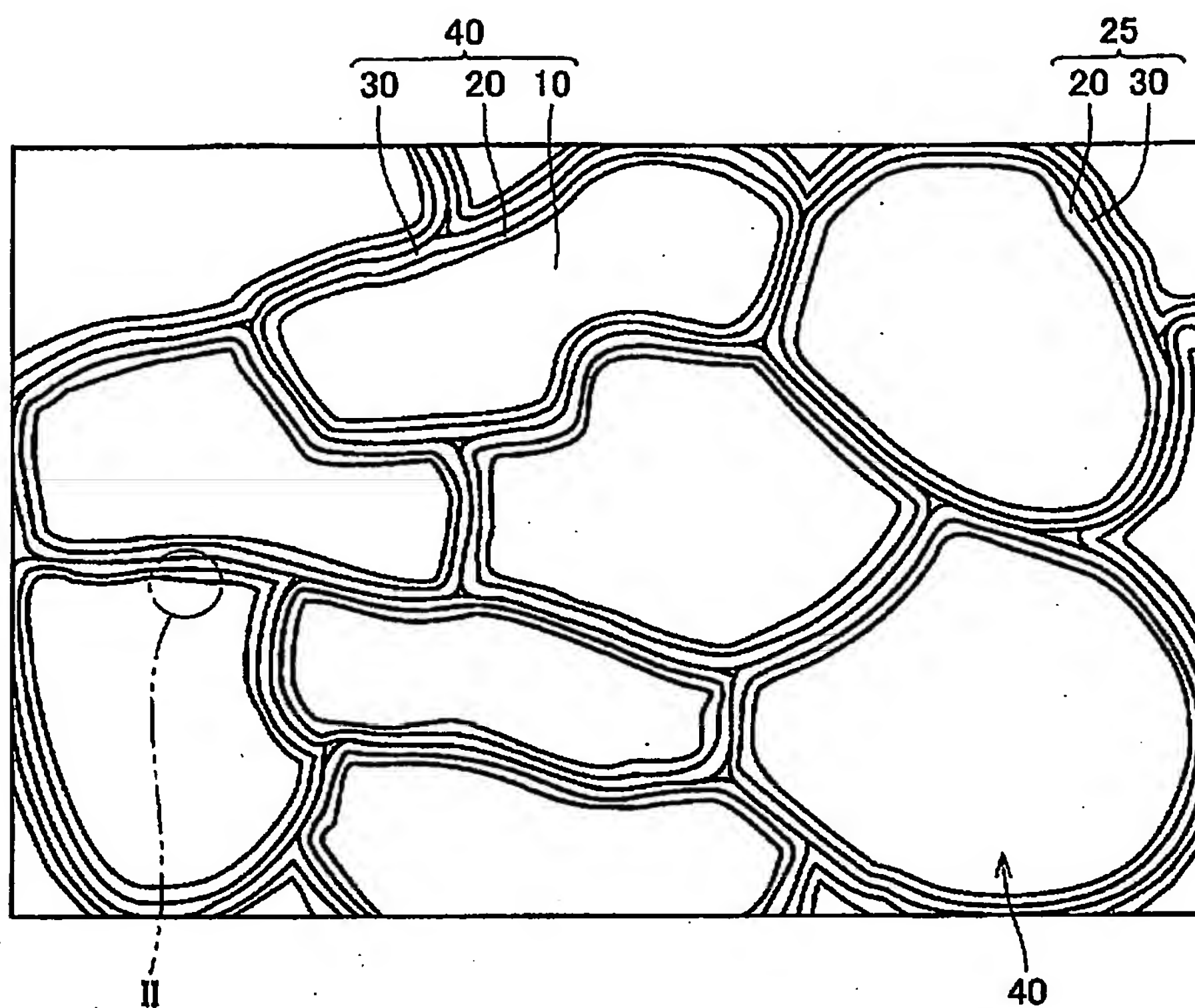
【図5】 この実施例において、各圧粉磁心材料で得られる最小の鉄損値を比較するグラフである。

#### 【符号の説明】

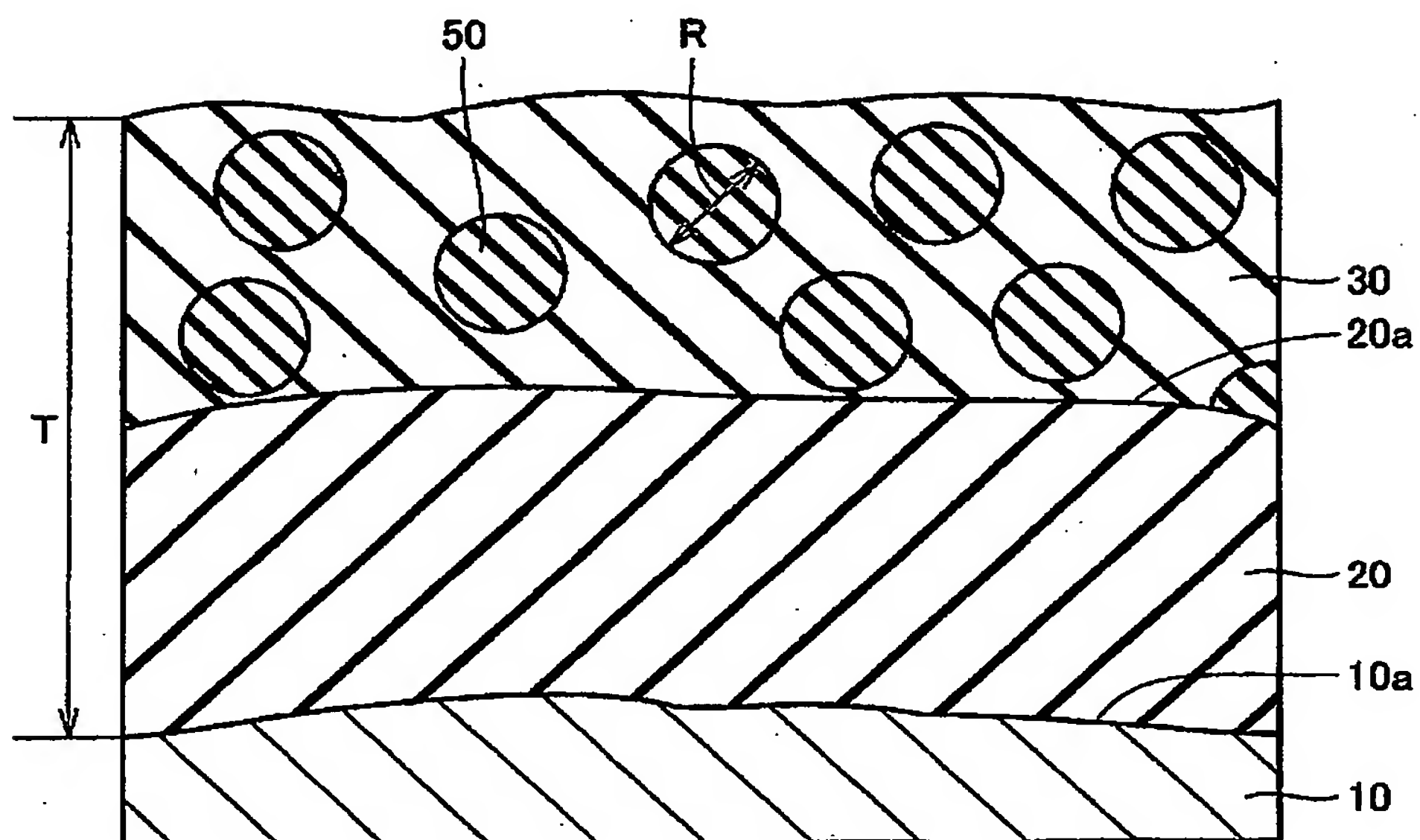
#### 【0059】

10 金属磁性粒子、10a, 20a 表面、20 下層被膜、25 被膜、30 上層被膜、40 複合磁性粒子、50 分散粒子。

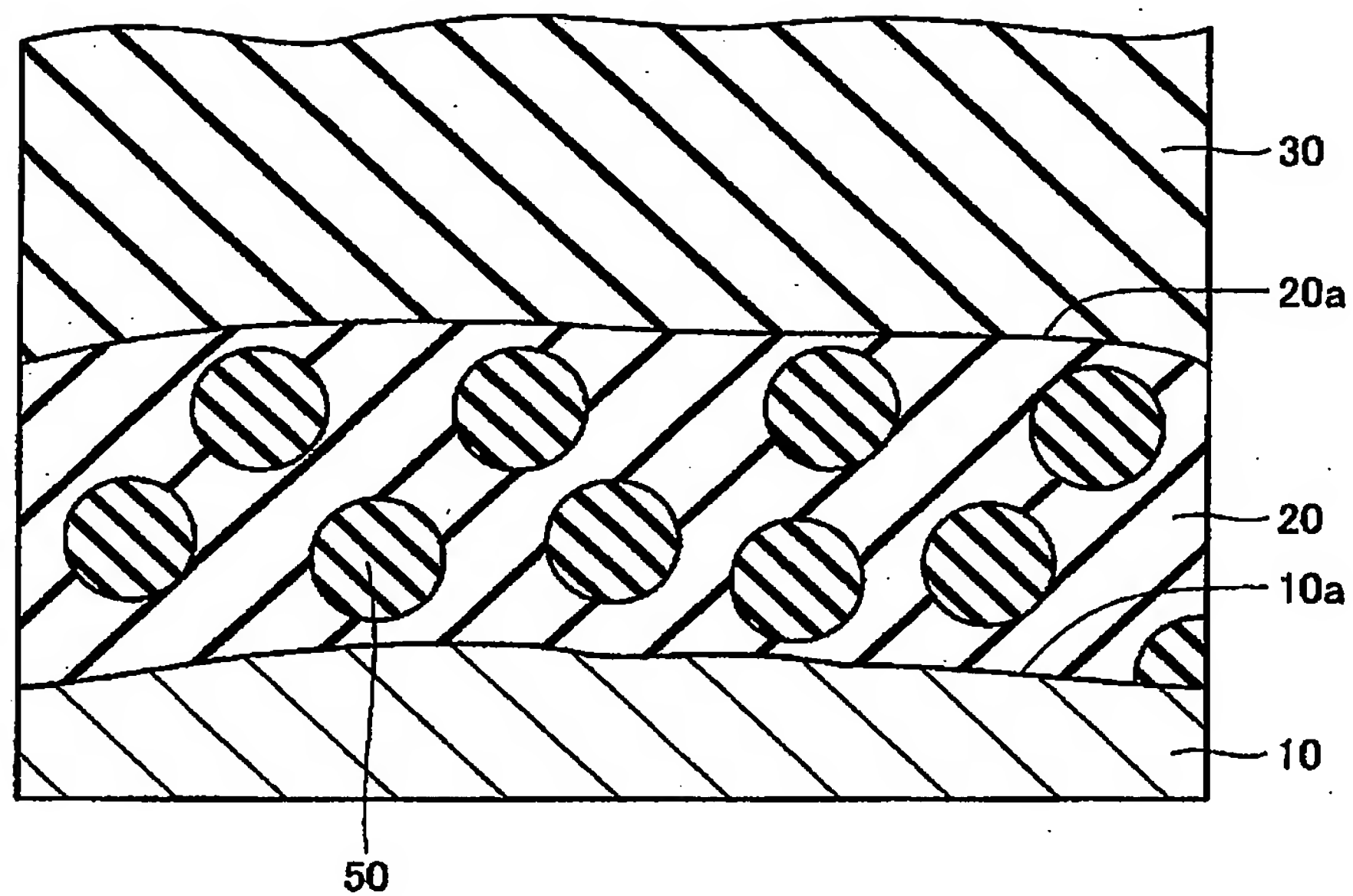
【書類名】 図面  
【図 1】



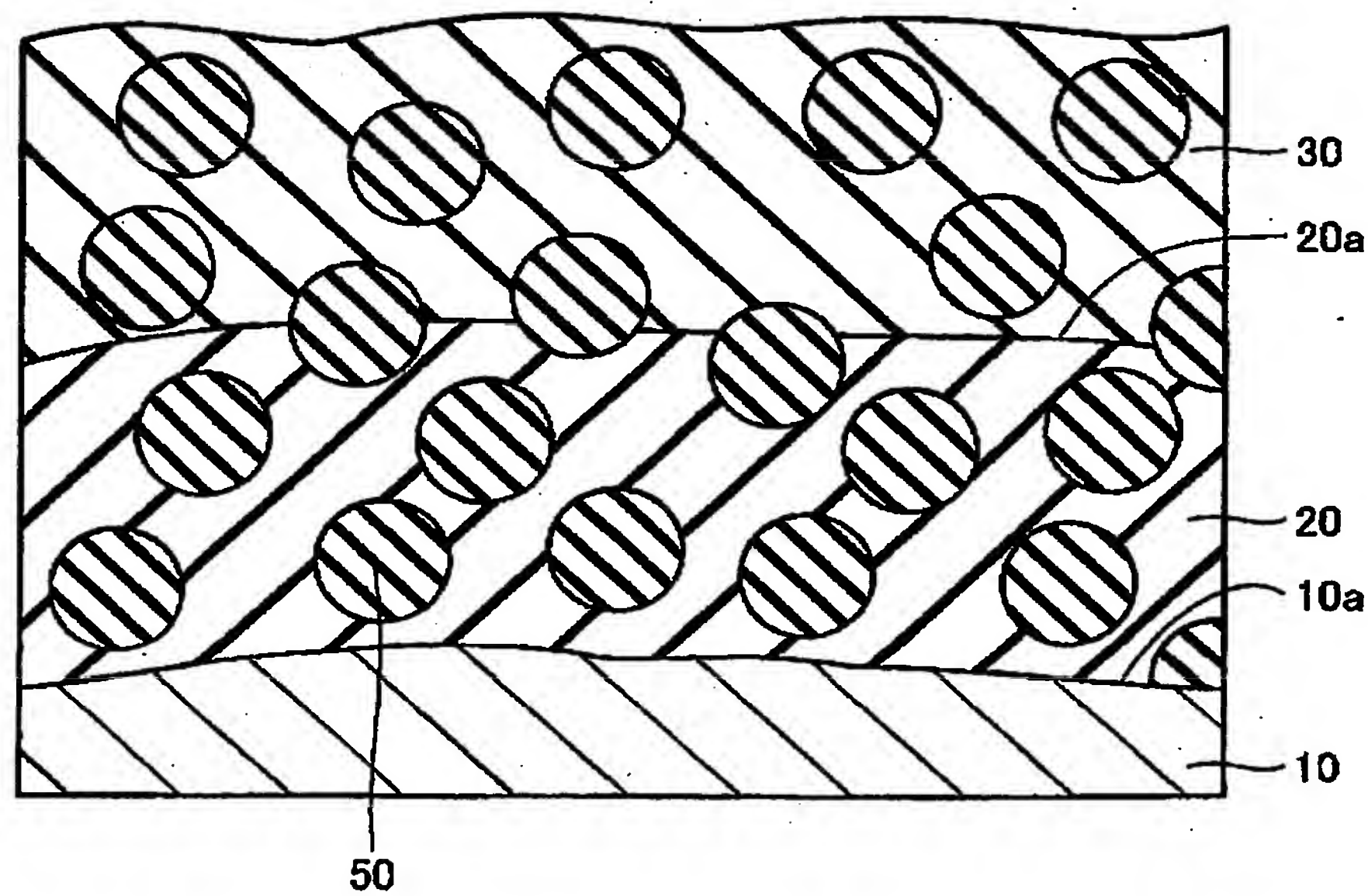
【図 2】



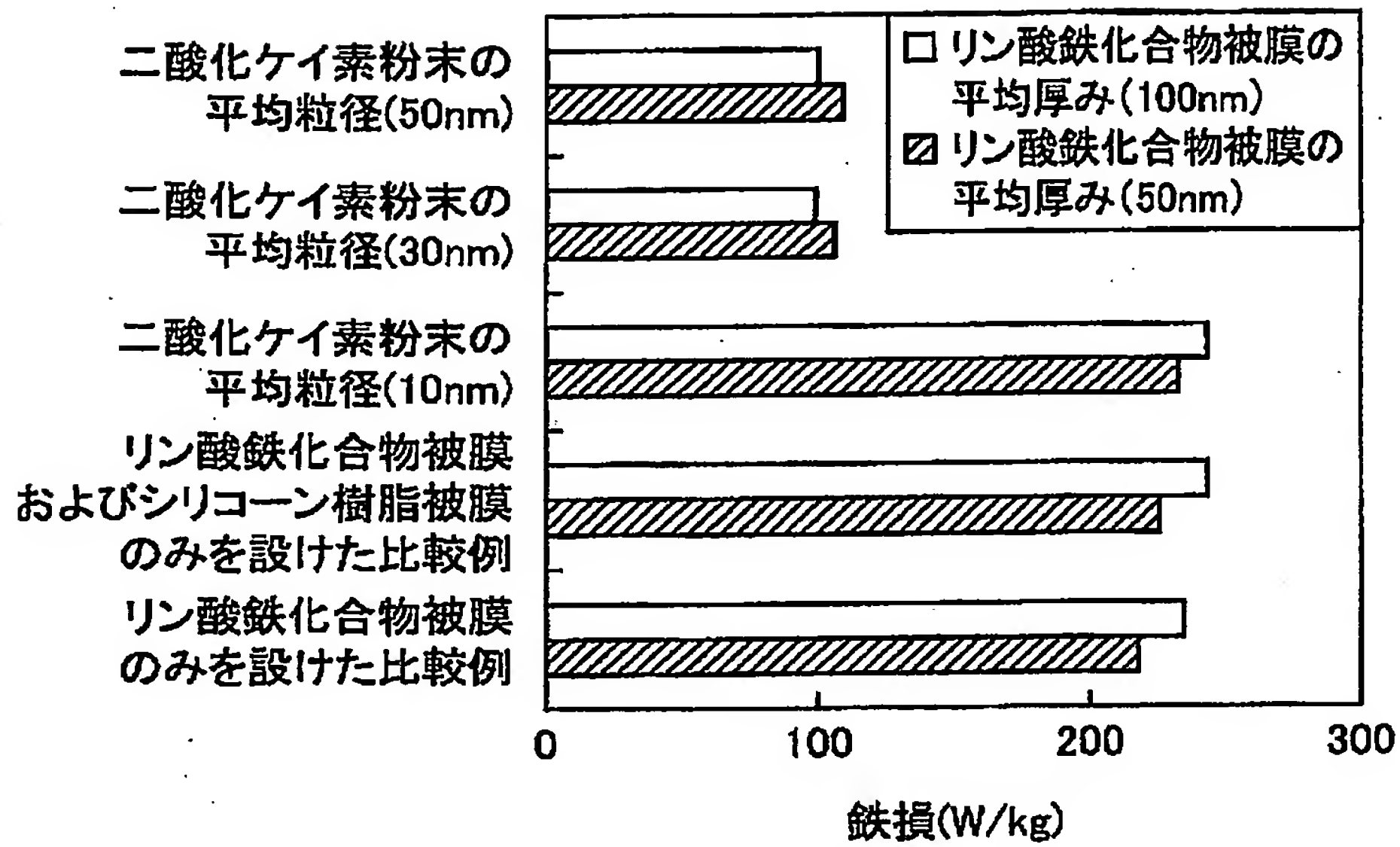
【図 3】



【図 4】



【図 5】



## 【書類名】 要約書

## 【要約】

【課題】 耐熱性に優れた絶縁性の被膜を備えるとともに、その被膜を良好に機能させて粒子間を流れる渦電流を十分に抑制できる圧粉磁心およびその製造方法を提供する。

【解決手段】 圧粉磁心は、互いに接合された複数の複合磁性粒子を備える。複数の複合磁性粒子の各々は、金属磁性粒子10と、金属磁性粒子10の表面10aを取り囲む絶縁性の下層被膜20と、下層被膜20の表面20aを取り囲み、ケイ素を含む上層被膜30と、下層被膜20および上層被膜30の少なくともいずれか一方に設けられた金属酸化物を含む分散粒子50とを有する。下層被膜20と上層被膜30とを合わせた被膜の平均厚みがTである場合、分散粒子50の平均粒径Rは、 $10\text{ nm} < R \leq 2T$ の関係を満たす。

【選択図】 図2



特願 2004-023958

出願人履歴情報

識別番号

[000002130]

1. 変更年月日

1990年 8月29日

[変更理由]

新規登録

住所

大阪府大阪市中央区北浜四丁目5番33号

氏名

住友電気工業株式会社